

PCT

世界知的所有権機関
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類7
B01D 53/04

A1

(11) 国際公開番号

WO00/59610

(43) 国際公開日

2000年10月12日(12.10.00)

(21) 国際出願番号

PCT/JP00/01889

(22) 国際出願日

2000年3月28日(28.03.00)

(30) 優先権データ

特願平11/88594

1999年3月30日(30.03.99)

JP

(81) 指定国 AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)

添付公開書類

国際調査報告書

(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)

クラレケミカル株式会社

(KURARAY CHEMICAL CO., LTD.)(JP/JP)

〒705-0025 岡山県備前市鶴海4342 Okayama, (JP)

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ)

猪木博文(IGI, Hirofumi)(JP/JP)

福西義晴(FUKUNISHI, Yoshiharu)(JP/JP)

詫間利昭(TAKUMA, Toshiaki)(JP/JP)

田丸 猛(TAMARU, Takeshi)(JP/JP)

〒705-0025 岡山県備前市鶴海4342

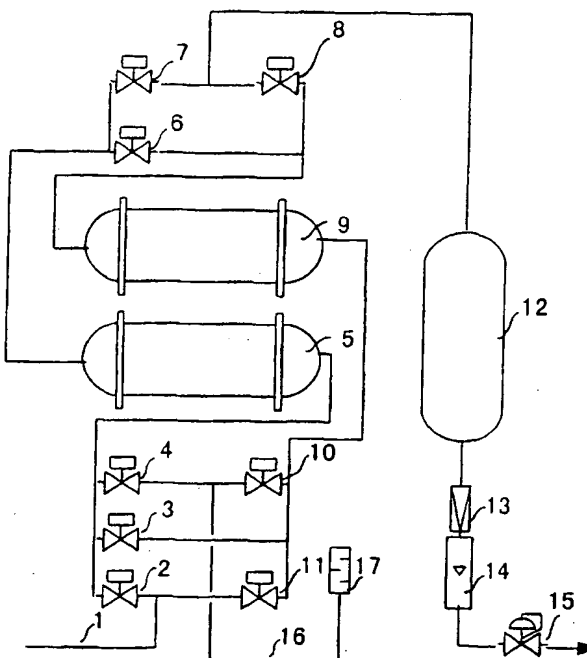
クラレケミカル株式会社内 Okayama, (JP)

(54)Title: MIXED GAS SEPARATING METHOD AND SEPARATING APPARATUS

(54)発明の名称 混合ガスの分離方法及び分離装置

(57) Abstract

A mixed gas is separated by the PSA method by arranging side by side an adsorption tower filled with an adsorbent fused with plastic powder, an adsorption tower filled with an adsorbent under pressure and a plurality of adsorption towers lower than a storage unit and connected to each other, or an adsorption tower equipped with channeling preventive means at the upper portion on the inner side of its inside.



(57)要約

プラスチック粉末で融着した吸着剤を充填した吸着塔、吸着剤を加圧して充填した吸着塔、吸着塔の高さが収納部の高さよりも低い複数の吸着塔からなるように構成して連結した吸着塔、又は吸着塔内部の内側面上部にチャンネンリング防止手段を設けた吸着塔を横方向に設置してP S A法により混合ガスを分離する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LV	ラトヴィア	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	MA	モロッコ	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MC	モナコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MD	モルドヴァ	TG	トゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MG	マダガスカル	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GN	ギニア	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
BY	ベラルーシ	GR	ギリシャ		共和国	TR	トルコ
CC	カナダ	GW	ギニア・ビサオ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CF	中央アフリカ	HR	クロアチア	MN	モンゴル	TZ	タンザニア
CG	コンゴ	HU	ハンガリー	MR	モリタニア	UA	ウクライナ
CH	スイス	ID	インドネシア	MW	マラウイ	UG	ウガンダ
CI	コートジボワール	IE	アイルランド	MX	メキシコ	US	米国
CM	カメルーン	IL	イスラエル	MZ	モザンビーク	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IN	インド	NE	ネパール	VN	ベトナム
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラヴィア
CU	キューバ	JP	日本	NZ	ニュージーランド	ZA	南アフリカ共和国
CY	キプロス	KE	ケニア	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

混合ガスの分離方法及び分離装置

5 技術分野

本発明は混合ガスの分離方法及び分離装置に関する。さらに詳しくは、内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する方法において、吸着塔を横方向又はそれと等価に設置して使用する混合ガスの分離方法及び分離装置に関する。

背景技術

近年、半導体製造プロセスなどへ窒素の需要が増大しており、かかる窒素の製造方法として、分子ふるい炭素などの炭素多孔体を使用して加圧した空気から窒素を取り出す圧カスイング吸着法が多く実施されている。また、転炉排ガスなどの工業用の混合ガスから、水素、一酸化炭素などを分離するのにP S A法が実施されている。圧カスイング吸着法(以下、P S A法と略称する)とは、例えば、原ガスを空気とした場合、通常2基以上の吸着塔を使用し、一方の吸着塔に加圧した空気を供給して酸素の吸着を行い、窒素を排出するとともに、その間他方の吸着塔を脱着に付し、複数の吸着塔間で酸素の吸着と脱着とを交互に繰り返し、分子ふるい炭素の酸素と窒素との吸着速度の差を利用して連続的に窒素を得る方法である。吸着塔を2基使用し、脱着を常圧で行う場合のフロー概略図を図2に示す。通常、P S A法を実施するのに使用されるプロア一、各種計装などの機器類の図示は省略する。

図 2 において、原ガスである加圧空気は、原ガス供給ライン 1 から弁 2 を通り、分子ふるい炭素が充填された第 1 の吸着塔 5 に供給される。ここで空気中の酸素が吸着され、濃縮された窒素は弁 7 を通って製品貯槽 12 に貯蔵される。空気は通常、コンプレッサーで 1 MPa 以下程度までに加圧されて使用される。一方、分子ふるい炭素などの吸着剤が充填され、所定の時間吸着操作に付された第 2 の吸着塔 9 は、弁 3、4、6、8 及び 11 が閉の状態、弁 10 が開の状態で大気開放され、このとき吸着された酸素を主成分とするガスが脱着される。脱着ガスは排気ライン 16 から排出される。17 はサイレンサーである。

所定時間経過後、弁 2、4、7、8、10 及び 11 が閉の状態弁 3 及び 6 が開の状態第 1 の吸着塔 5 と第 2 の吸着塔 9 の圧力差を利用して加圧空気を回収する。加圧空気を回収して次の吸着操作に使用することにより、純度を落とすことなく、効率よく成分ガスを得ることができるので、吸着塔の切り替え時に加圧空気を回収するのが望ましい。加圧空気を回収した後、原ガスである加圧空気は、原ガス供給ライン 1 から弁 11 を通り、分子ふるい炭素が充填された第 2 の吸着塔 9 に供給され、ここで同様に空気中の酸素が吸着され、濃縮された窒素は弁 8 を通って製品貯槽 12 に貯蔵される。

一方、分子ふるい炭素が充填され、所定の時間吸着操作に付された第 1 の吸着塔 5 は、弁 2、3、6、7 及び 10 が閉の状態、弁 4 が開の状態で大気開放され、このとき吸着された酸素を主成分とするガスが脱着される。該脱着ガスは同様に排気ライン 16 から排出される。第 1 の吸着塔と第 2 の吸着塔において、吸着及び脱着の操作は、タイマーなどにより適宜設定されたサイクルで交互に繰り返し行われ、窒素は連続的に製造される。製品窒素は減圧弁 13 で減圧され、流量計 14 を通り、弁 15 から所望に応じて消費される。以上の操作を連続的に行うことによ

り、製品窒素を連続的に製造することができる。この原理は、原ガスを空気以外のガスとして実施する場合も同じである。

近年、P S A法の普及にはめざましいものがあり、製品ガスの使用が多様化されるに従って、P S A装置のコンパクト化が要求されてきている。従来のP S A法に使用される吸着塔は、通常、縦方向に設置して使用されており（縦型）、装置のコンパクト化の要求に対しては、吸着剤の性能をアップして装置全体を小型化することで対応がなされていた。しかしながら、屋内などに吸着塔を縦方向に設置して使用する場合、高さに制限があることが多く、P S A装置の設置は収納部の高さにより大きく制限を受けていた。

P S A 法において、吸着塔を横方向に設置することができれば（横型）、収納部の高さはある程度低くてもよく、装置の設置場所の制限が大幅に緩和される。しかしながら、一般に、吸着塔を横方向に設置して使用すると、吸着塔内の吸着剤の均一充填が損なわれ、ガスの偏流が生じることによって吸着効率が大きく低下する。吸着剤の均一充填を保つために吸着剤を成型固定化すると、ガスと吸着剤との有効接触面積が減少し、この場合も吸着効率が低下する。吸着塔を横型にすることは非常にメリットがあり、要望されているが、以上のような問題点が解決されていないため、横型 P S A 法は実施されていないのが現状である。

一方、吸着塔を設置状態に関わりなく使用可能な吸着式ガス発生装置が特開平5-261234号公報に提案されている。この吸着式ガス発生装置は、吸着槽内の側壁に、側壁から槽の内方へ突出する複数の仕切り壁を、突出する方向を互いに異なるように設けたものであり、この装置は、横方向に設置して使用しても吸着剤の充填状態は一応良好であると考えられる。しかしながら、このような装置は複雑で、作製するのが難しく、しかも、吸着剤の装置への投入及び装置からの吸着剤の排出が困

難で煩雑であり、工業的に有用な装置であるとは言い難い。したがって、本発明の目的は、収納部の高さ制限が緩和され、吸着効率の低下が少なく、作製が容易な複数の吸着塔を用いて混合ガスを分離する方法と分離装置を提供することにある。

5

発明の開示

本発明者らは上記目的を達成するため鋭意検討を重ね、プラスチック粉末で融着せしめた吸着剤を吸着塔に使用すると、吸着性能の低下が意外に少ないことを見出し、本発明に至った。すなわち、本発明は、内部
10 に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する方法において、プラスチック粉末で融着せしめた吸着剤を充填した吸着塔を横方向に設置して使用することを特徴とする混合ガス
15 の分離方法である。

本発明の別の発明は、内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する方法において、吸着剤を加圧
20 して充填した吸着塔を横方向に設置して使用することを特徴とする混合ガスの分離方法である。

本発明の別の発明は、内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する方法において、吸着塔の高さ
25 が収納部の高さよりも低い複数の吸着塔からなるように吸着塔を構成し、

これらの吸着塔を連結して収納部へ設置して使用することを特徴とする混合ガスの分離方法である。

5 本発明の別の発明は、内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する混合ガスの分離装置において、プラスチック粉末で融着せしめた吸着剤を充填した吸着塔を横方向に設置した混合ガスの分離装置である。

10 本発明の別の発明は、内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する混合ガスの分離装置において、横方向に設置した吸着塔内部の内側面上部にガスのチャンネリング防止手段を設けた混合ガスの分離装置である。

15 本発明の別の発明は、内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する混合ガスの分離装置において、吸着塔の高さが収納部の高さよりも低い複数の吸着塔からなるように吸着塔を構成し、これらの吸着塔を連結して収納部へ設置した混合ガスの
20 分離装置である。

図面の簡単な説明

第1図は、吸着塔を横方向に設置してP S A法により混合ガスを分離
25 する方法を示すフローの概略図であり、第2図は、吸着塔を縦方向に設置してP S A法により混合ガスを分離する従来の方法を示すフローの概

略図であり、第3図は、吸着塔を高さの低い複数の吸着塔から構成し、連結してP S A法により混合ガスを分離する方法を示すフローの概略図である。また、第4図は、横方向に設置した吸着塔の上部に仕切り板を設けた例であり、第5図は、横方向に設置した吸着塔の上部に風船を設けた例である。

発明を実施するための最良の形態

本発明に使用される選択性吸着剤としては、吸着成分ガスの性状に応じて選択することができ、例えば、木炭、石炭、コークス、やし殻、樹脂、石油ピッチなどを原料として高温で炭化して製造された木質系、石炭系、樹脂系、ピッチ系などの炭化物を細孔調整した活性炭、活性アルミナ、シリカゲル、ゼオライト、モデルナイト系ゼオライト、Na-A型ゼオライトなどの変性ゼオライトなどをあげることができる。なかでも、微細孔分布が均一で酸素の吸着特性に優れる分子ふるい炭素は、空気から窒素を選択的に製造するのに好ましい吸着剤である。

本発明において、吸着剤はプラスチック粉末で融着せしめて使用される。吸着剤を融着するためのプラスチック粉末としては、吸着剤を融着できるものであればよく、例えばポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィン類をあげることができる。なかでもポリエチレンは、僅かに枝分かれ構造を含む、通常分子量が6000以上の線状高分子で、融点が低く、熱可塑性に優れ、化学的に安定であり、好ましい。プラスチック粉末の中心平均粒子径は1～50 μ mのものが吸着剤を固定化する効果が大きく、好ましい。プラスチック粉末の使用量は、あまり多いと吸着剤の有効吸着面積が減少して吸着効率が低下し、また、あまり少ないと吸着剤を固定化することが困難となるので、吸着剤100重量%に対し、プラスチック粉末0.01～20重量%で使用される。

吸着剤にプラスチック粉末を融着させる方法は限定されないが、通常は、まず、吸着剤にプラスチック粉末を加え、ミキサー、リボンミキサー、スタティックミキサー、ボールミル、ニーダーなど通常工業的に使用される混合手段により混合する。両者を混合することによって摩擦による静電気が発生し、プラスチック粉末が吸着剤表面に吸引されて吸着される。そして、電気炉などの加熱手段に静置し、 $100 \sim 200^{\circ}\text{C}$ の範囲で2時間以上加熱することによって融着させる。また、波長が $10 \sim 20 \mu\text{m}$ の遠赤外線を照射してプラスチック粉末を熔融させてもよい。プラスチック粉末が融着されると吸着剤表面に透明で網目状のフィルムが形成される。

吸着剤とプラスチック粉末とを混合し、プラスチック粉末を熔融して吸着剤表面に融着し、吸着剤を固定化した後、吸着塔に収納する。吸着剤とプラスチック粉末を予め吸着塔に充填しておき、外部から加熱する、遠赤外線を照射するなどの方法によりプラスチック粉末を熔融すれば、吸着剤を吸着塔に充填したままで固定化できるので、好ましい。更に、加熱時に吸着剤に上記温度範囲に加熱した窒素ガス等の不活性ガスを流通させ、吸着塔内部から加熱するとともに吸着剤の酸化劣化を防ぐのが好ましい。

吸着剤とプラスチック粉末を混合したのち吸着塔へ充填し、加熱融着を行う方法において、吸着剤の吸着塔への充填はできる限り最密充填とするのが好ましい。そのためには、吸着塔を縦置きにして吸着剤を充填し、縦置きのまま加熱する方が、吸着塔と吸着剤の隙間を少なくすることができ、均一性も保たれるので、望ましい。また、縦置きで充填すると、プラスチック粉末が分離して吸着塔下部方向へ移動することがあるが、これは、例えば、吸着剤とプラスチック粉末の混合比率を上部では多く、下部方向に少なくなるように充填することで防ぐことができる。

吸着剤とプラスチック粉末を融着させる方法として、プラスチック粉末を界面活性剤に溶解し、溶液状にして用いる方法も採用することができる。この方法は、吸着剤のみを吸着塔へ充填し、溶液を吸着塔へ流通させ、その後加熱して吸着剤を固定化すればよく、吸着剤を吸着塔へ最

5 密充填できるので、良好な充填状態とすることができる。

このようにして作製した吸着塔は横方向に設置しても吸着塔中の吸着剤の充填状態は良好に保持される。とくに、本発明の分離装置は、前述したように、吸着塔を横方向に設置することにより、装置の収納部の高さに制限がある場合でも設置可能であり、装置のコンパクト化に大きく寄与することができる。

本発明において、吸着剤を加圧して充填した吸着塔を横方向に設置して使用してもよい。吸着剤は、加圧しながら吸着塔に充填してもよく、吸着塔に充填した後に、プレス機等により加圧してもよい。加える圧力は、使用する吸着剤の強度によって異なり、吸着剤がつぶれない程度とする。吸着剤を加圧し固定化させる際に、吸着剤に力がかかり易くする為、吸着塔に完全に充填してから加圧するのではなく、何段階かに分けて吸着剤を充填し、その都度加圧して固定化すると、吸着剤をつぶすことなく固定化することができ、好ましい。吸着剤を加圧固定化した後、吸着塔の上下にバネ等の機械的な支えを設けると吸着剤が崩れにくくなり、好ましい。このようにして作製した吸着塔は、吸着剤が均一に保たれるため、ガスの偏流もなく、吸着性能は良好に保たれる。

吸着塔を横方向に設置するのと等価な態様として、吸着塔の高さが収納部の高さよりも低い複数の吸着塔からなるように吸着塔を構成し、これらの吸着塔を連結して収納部へ設置して使用することも可能である。

25 各吸着塔の大きさは同じであってもよく、収納部に収納できる範囲内で種々の大きさの吸着塔を組み合わせ使用してもよい。図3はこのよう

な態様を示す一例である。

以上述べた、プラスチック粉末で融着せしめた吸着剤を吸着塔に充填する方法、又は吸着剤を加圧して充填する方法によらず、通常の充填方法により充填する場合、横方向に設置した吸着塔内部の内側面上部は、
5 空間が生ずることが多く、ガスのチャンネリングが発生して吸着効率が低下する。このような場合でも、吸着塔内部の内側面上部にガスのチャンネリングを防止する手段を設けることにより、吸着塔を横方向に設置してP S A法を実施することができる。チャンネリング防止手段の例としては、複数の仕切り板をあげることができる。仕切り板の大きさは、
10 あまり大きいと吸着塔の断面積が減少し、空塔速度が増加し、吸着剤の吸着効率が低下し、小さすぎるとガスの偏流を防ぐことができないため、吸着塔断面積の1～20%の大きさとするのが好ましい。

仕切り板は、厚すぎると吸着剤の充填が不十分になるため、0.5～5mm程度の板厚とするのが好ましい。仕切り板の数は、多い方がガスの偏流を防ぐことができて好ましいが、多すぎると仕切り板の間隔が狭まり、吸着剤を十分に吸着塔に充填できなくなるため、仕切り板は2～50cmの間隔で設けるとよい。仕切り板の材質としては、ガスを通さないものであればよく、たとえば鉄板や合成樹脂板などがあげられる。吸着塔へ仕切り板を設置するには、仕切り板を一枚ずつ吸着塔へ全溶接
20 するのが好ましいが、仕切り板を土台となる板の上に全溶接し、土台ごと吸着塔に溶接してもよい。また、仕切り板に合成樹脂を用いる場合、土台ごと一体成型し、吸着塔に接着した方がガスの漏れる心配がなく好ましい。このようにして作製した吸着塔に吸着剤を充填し、横方向に設置した場合、吸着塔中の吸着剤の上部に空間が生じても、仕切り板により
25 りガスの偏流は発生せず、吸着性能は良好に保持される。また、本発明では、仕切り板を吸着塔の上部にのみ設ければよいので、吸着剤を吸着

塔に容易に充填することができる。横方向に設置した吸着塔の上部に仕切り板 18 を設けた例を図 4 に示す。

本発明において、吸着塔を横方向に設置する際に、チャンネリング防止手段として吸着塔の内側面に風船を設けてもよい。風船の材質としては、風船内のガスを通さず、安全で耐磨耗性のあるものであればとくに制限はなく、例えば、合成ゴムや合成樹脂などを使用することができる。風船の厚みがあまり厚すぎると風船と吸着材の接触面に空間が生じやすいため薄いほうが好ましいが、薄すぎると耐久性が落ちるため、適度な厚みのものを選択して使用すればよい。

吸着塔内の風船の圧力は、吸着塔内の圧力より高くする必要がある。吸着塔へ風船を設置するには、吸着塔に風船用のガス導入口を設置し、風船の内部圧力を圧力センサーで監視し、吸着塔の吸着圧力と差圧がつくように制御すればよい。風船に用いるガスは、原料混合ガスや製品成分ガスを用いてもよい。風船を吸着塔に設置後、吸着剤を吸着塔に充填し、吸着塔を横方向に設置する。吸着塔の上部に空間が生じてても、風船の内圧を上げることにより、空間をふさぐことができるので、ガスの偏流は発生せず、吸着性能は良好に保持される。横方向に設置した吸着塔の上部に風船 19 を設けた例を図 5 に示す。

本発明の混合ガス分離装置を使用して混合ガスを分離する方法を図 1 に示すが、基本的には図 2 で述べた P S A 法と同じであり、吸着塔を横方向に設置するか、又はそれと等価の態様で実施することができる。本発明の方法を工業的に実施するのに公知の P S A に関する技術を利用することができる。例えば、特開昭 64-38124 号公報、特開昭 64-56113 号公報、特開昭 64-70121 号公報、特開平 1-274822 号公報などに開示されているように、吸着操作を完了した吸着塔と脱着操作を完了した吸着塔の入口部どうし及び出口側どうしを連通

してもよく、特開平 5 - 2 6 1 2 3 3 号公報に開示されているように、製品ガスの純度を落とすことなく、効率よく製品ガスを得るために、常圧再生中に、第 2 の吸着塔に少量の製品ガスを流して吸着塔内を洗浄するいわゆるリンスを行ってもよい。また、製品ガスの消費が少ない場合は、製品ガスの純度が必要以上に高くなるため、各吸着塔において吸着時間を延長し、吸着回数を減少させ、原ガスの消費を抑えるターンダウンを組み合わせてもよい。このとき、吸着塔の再生・洗浄に用いる製品窒素のリンス量も減少させれば、さらに原ガスの消費を抑えることができる。また、高い圧力の製品ガスが必要な場合、弁 1 5 に流量制御弁を用いて製品ガス流量を一定に保ち、昇圧機を使用して製品ガスを昇圧して使用するか、昇圧された製品ガスを製品貯槽とは別の貯槽に蓄えて使用してもよい。この場合、製品貯槽の圧力によって適宜 P S A の運転・停止を制御してもかまわない。その他、P S A を工業的に実施するのに必要な各種計装などの機器類は公知の技術を利用することができる。

混合ガスとしては、空気その他、水素、一酸化炭素、エタン、エチレン、各種炭化水素などの工業用ガスが適用可能であるが、空気を使用して窒素を製造するのが好ましく、吸着剤としては、分子ふるい炭素を使用するのが好ましい。以下、実施例により本発明をさらに詳しく説明する。

20 参考実験例

直径 8 9 m m、長さ 6 5 0 m m の鉄製の円筒を 2 基準備し、各々の円筒の片端を 1 4 メッシュの金属製の網で仕切り、分子ふるい炭素（クレケミカル株式会社製 2 G N）を吸着塔全容積の 9 0 % になるように充填した。該 2 基の円筒を吸着塔とし、図 2 のように吸着塔を縦型に設置して 0 . 6 4 M P a に加圧した空気を 2 1 . 3 N L / 分（L : リットル）で流し、窒素の分離試験を行ったところ、純度 9 9 . 9 % の窒素が 5 . 6

N L / 分で得られた。

実施例 1

参考実験例で使用したのと同じ鉄製の円筒を 2 基準備し、同様に分子ふるい炭素を吸着塔に充填した。分子ふるい炭素 1 0 0 重量%に対し、
5 中心平均粒子径 2 0 μ m のポリエチレン粉末 0 . 3 重量%を加え、ミキサーにてよく混合した。次いで、電気炉に静置し 1 5 0 $^{\circ}$ C で加熱した。分子ふるい炭素は円筒の中で固定化された。該 2 基の円筒を吸着塔とし、図 1 のように設置して、0 . 6 4 M P a の加圧空気を使用して窒素の分離試験を行ったところ、純度 9 9 . 9 % の窒素が 5 . 2 N L / 分で得られ
10 た。

実施例 2

参考実験例で使用したのと同じ鉄製の円筒を 2 基準備し、分子ふるい炭素を吸着塔に充填し、0 . 6 M P a の圧力をかけてさらに密に固定化した。該 2 基の円筒を吸着塔とし、図 1 のように設置して実施例 1 と
15 同様に加圧空気を使用して窒素の分離試験を行ったところ、純度 9 9 . 9 % の窒素が 5 . 0 4 N L / 分で得られた。

実施例 3

参考実験例で使用したのと同じ直径の鉄製の円筒を、容量が同じになるように 6 基準備し、実施例 2 と同様に分子ふるい炭素を充填した。
20 該 6 基の円筒を吸着塔として連結し、第 3 図のように構成し、実施例 1 と同様に加圧空気を使用して窒素の分離試験を行ったところ、純度 9 9 . 9 % の窒素が 5 . 0 4 N L / 分で得られた。

実施例 4

参考実験例で使用したのと同じ鉄製の円筒を 2 基準備し、図 3 のよ
25 うな直径 8 9 m m の円を弧の高さが 7 m m の弧形に加工した板厚 1 m m のプラスチック板を 2 0 m m 間隔で土台の板厚 0 . 5 m m のプラスチック

ク板に接着した仕切り板を作製し、円筒内側面に接着した後、分子ふるい炭素を全容積の90%になるように充填した。実施例1と同様に加圧空気を 사용하여窒素の分離試験を行ったところ、純度99.9%の窒素が5.4NL/分で得られた。

5 実施例 5

参考実施例で使用したのと同じ鉄製の円筒を2基準備し、図4のようなゴム製の風船を円筒内側面に設置したのち分子ふるい炭素を全容積の90%になるように充填した。該2基の円筒を吸着塔とし、風船内圧を0.7MPaとして図1のように設置し、実施例1と同様に加圧空気を
10 を使用して窒素の分離試験を行ったところ、純度99.9%の窒素が5.5NL/分で得られた。

比較例

吸着剤を空の筒に通常どおり充填したものを吸着塔とし、該吸着塔を横方向に設置して同様に窒素の分離試験を実施したところ、99.9%
15 の窒素純度は得られなかった。

振動試験

実施例及び比較例で使用した吸着剤が充填された吸着塔を、動電式振動試験装置VS-1031-200（IMV株式会社製）にかけ、振動条件：30-1500Hz、1.5時間、加速度1G、2G、3Gで振動
20 試験を行ったところ、実施例で使用した吸着塔の性能は殆ど低下が見られなかったが、比較例で使用した吸着塔は、加速度2G以上をかけると性能がさらに大幅に低下した。この結果から、本発明に使用する吸着塔は十分振動に耐えられるものであることが明らかである。

実施例 6

25 参考実施例で使用したのと同じ鉄製の円筒を2基準備し、分子ふるい炭（ユニオン昭和株式会社製モレキュラーシーブス5A）を吸着剤と

して使用し、0.49 MPaの加圧空気を使用して酸素の分離試験を行ったところ、空気供給量200 NL/分のとき、濃度99.5%の酸素が25 NL/分で得られた。

実施例 7

- 5 参考実施例で使用したのと同じ鉄製の円筒を2基準備し、25℃、1 atm、10分間の炭酸ガス吸着量が49.5 ml/gで、かつメタンガスの吸着量が炭酸ガスの1/35.4の分子ふるい炭素を充填し、吸着塔とした。実施例1と同様に吸着剤を固定化し、該2基の吸着塔を第1図のように設置し、メタン7.4%、炭酸ガス2.5%、水素1%で水
- 10 蒸気で飽和されたガスを原ガスとして、圧力0.69 MPaで可燃性ガスの分離を行ったところ、メタン97.8%、炭酸ガス0.7%、水素1.5%の製品ガスが得られた。メタンの回収率は97.2%であった。

実施例 8

- 参考実施例で使用したのと同じ鉄製の円筒を2基準備し、ゼオライ
- 15 ト系吸着剤（不二見研磨材工業株式会社製AH-S11）に銅化合物を担持したものを吸着剤として充填し、吸着塔とした。実施例1と同様に吸着剤を固定化し、該2基の吸着塔を第1図のように設置し、一酸化炭素8.5%、炭酸ガス1.5%のガスを原ガスとして、圧力0.59 MPaで一酸化炭素の分離を行ったところ、純度95.65%の一酸化炭素が
- 20 13 NL/分で得られた。一酸化炭素の回収率は92.4%であった。

実施例 9

- 参考実施例で使用したのと同じ鉄製の円筒を2基準備し、活性炭（クラレケミカル株式会社製2GA）充填し、吸着塔とした。実施例1と同様に吸着剤を固定化し、該2基の吸着塔を第1図のように設置し、水素
- 25 ガス7.5%、炭酸ガス2.5%のガスを原ガスとして、圧力0.88 MPaで水素ガスの分離を行ったところ、純度99.99%の水素ガスが2

5 N L / 分で得られた。

実施例 10

やし殻炭から常法により調整された、1 a t m、25℃での3分間の窒素ガス吸着量及び二酸化炭素ガスの吸着量がそれぞれ10.9 m l / g 及び74.5 m l / g (選択吸着係数9.1)の活性炭を、液化石油ガスを燃焼させた酸素ガス3%を含む雰囲気中で400℃、5時間処理し、窒素ガス吸着量及び二酸化炭素ガスの吸着量がそれぞれ3.6 m l / g 及び40 m l / g (選択吸着係数11.1)の活性炭を得た。ガス吸着量は、特開平3-98641号に開示された方法により測定した。

参考実施例で使用したのと同じ鉄製の円筒を2基準備し、該活性炭を吸着剤とし、実施例1と同様に固定化して吸着塔とした。該2基の吸着塔を第1図のように設置し、窒素ガス75%、炭酸ガス25%のガスを原ガスとして、常圧で炭酸ガスの分離を行ったところ、純度99.0%の炭酸ガスが0.9 N L / 分で得られた。

実施例 11

実施例1で使用した吸着塔にタイマーを付設し、製品窒素によるリンスを含む1回の吸着時間、すなわち、半サイクル時間を100秒として吸着及び再生を連続で実施した。再生は常圧再生とした。また、製品貯槽には、圧力スイッチを設け、貯槽圧力に応じて装置を自動的にオン・オフ運転したところ、実施例1とほぼ同様の結果を得ることができた。

産業上の利用可能性

本発明により、プラスチック粉末で融着した吸着剤を充填した吸着塔、吸着剤を加圧して充填した吸着塔、吸着塔の高さが収納部の高さよりも低い複数の吸着塔からなるように構成して連結した吸着塔、又は吸着塔内部の内側面上部にチャンネンリング防止手段を設けた吸着塔を横方向

に設置してP S A法により混合ガスの分離方法及び分離装置を提供することができる。本発明によれば、吸着塔を横方向に設置して使用しても吸着剤の充填状態は良好であり、しかも吸着能力の低下はわずかであるので、P S A装置をコンパクト化することができる。したがって、設置
5 スペースが限られる例えば船舶など収納部の高さに制限のある空間においても、吸着塔を横方向に設置して使用することが可能であり、有用性
が大きい。

10

15

20

25

請 求 の 範 囲

1. 内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する方法において、プラスチック粉末で融着せしめた吸着剤を充填した吸着塔を横方向に設置して使用することを特徴とする混合ガスの分離方法。
2. 該プラスチック粉末がポリエチレンである請求項1記載の混合ガスの分離方法。
3. 内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する方法において、吸着剤を加圧して充填した吸着塔を横方向に設置して使用することを特徴とする混合ガスの分離方法。
4. 内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する方法において、吸着塔の高さが収納部の高さよりも低い複数の吸着塔からなるように吸着塔を構成し、これらの吸着塔を連結して収納部へ設置して使用することを特徴とする混合ガスの分離方法。
5. 該混合ガスが空気である請求項1～4いずれかに記載の混合ガスの分離方法。
6. 該吸着剤が分子ふるい炭素である請求項1～5いずれかに記載の混合ガスの分離方法。

7. 内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する混合ガスの分離装置において、プラスチック粉末
5 で融着せしめた吸着剤を充填した吸着塔を横方向に設置した混合ガスの分離装置。

8. 該プラスチック粉末がポリエチレンである請求項7記載の混合ガスの分離装置。

9. 内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方
10 に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易吸着成分ガスを分離する混合ガスの分離装置において、横方向に設置した吸着塔内部の内側面上部にガスのチャンネリング防止手段を設けた混合ガスの分離装置。

15 10. 該チャンネリング防止手段が複数の仕切り板である請求項9記載の混合ガスの分離装置。

11. 該仕切り板が吸着塔断面積の1~20%の大きさである請求項10記載の混合ガスの分離装置。

12. 該仕切り板が2~50cmの間隔で設けられた請求項10又は1
20 1記載の混合ガスの分離装置。

13. 該チャンネリング防止手段が風船である請求項9記載の混合ガスの分離装置。

14. 内部に選択性吸着剤を充填した少なくとも2基以上の吸着塔の一方に加圧した混合ガスを供給し、高圧吸着工程と低圧再生工程をそれぞれの吸着塔で交互に繰り返す圧カスイング吸着法により混合ガスから易
25 吸着成分ガスを分離する混合ガスの分離装置において、吸着塔の高さが

収納部の高さよりも低い複数の吸着塔からなるように吸着塔を構成し、
これらの吸着塔を連結して収納部へ設置した混合ガスの分離装置。

1 5. 該混合ガスが空気である請求項 7 ～ 1 4 いずれかに記載の混合ガスの分離装置。

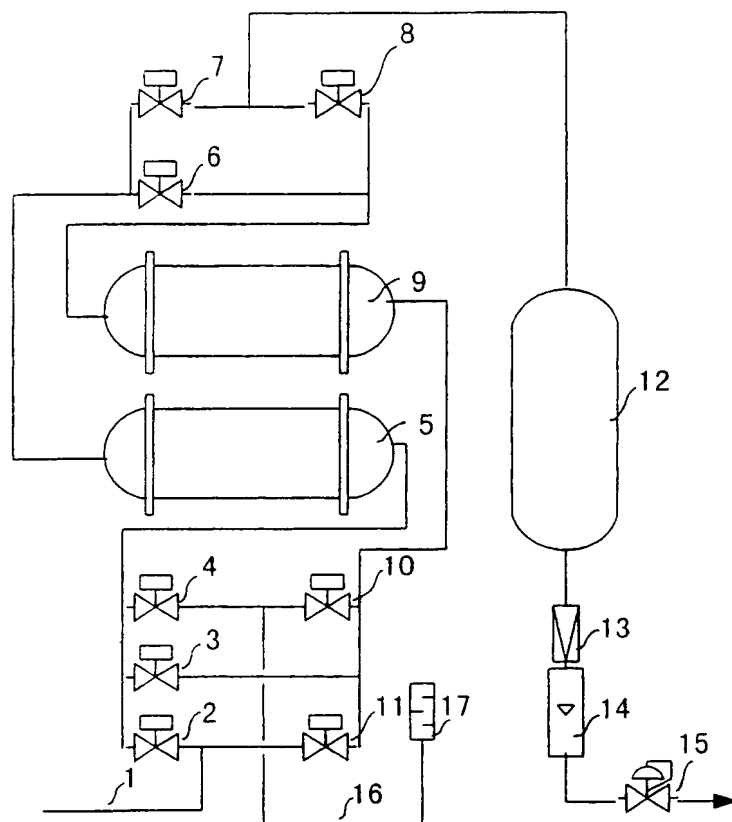
5 1 6. 該吸着剤が分子ふるい炭素である 7 ～ 1 5 いずれかに記載の混合ガスの分離装置。

10

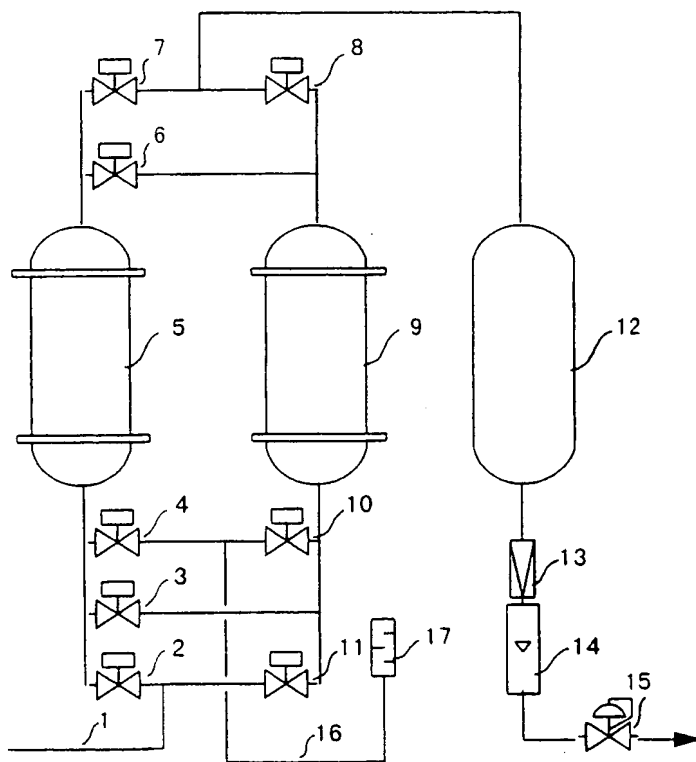
15

20

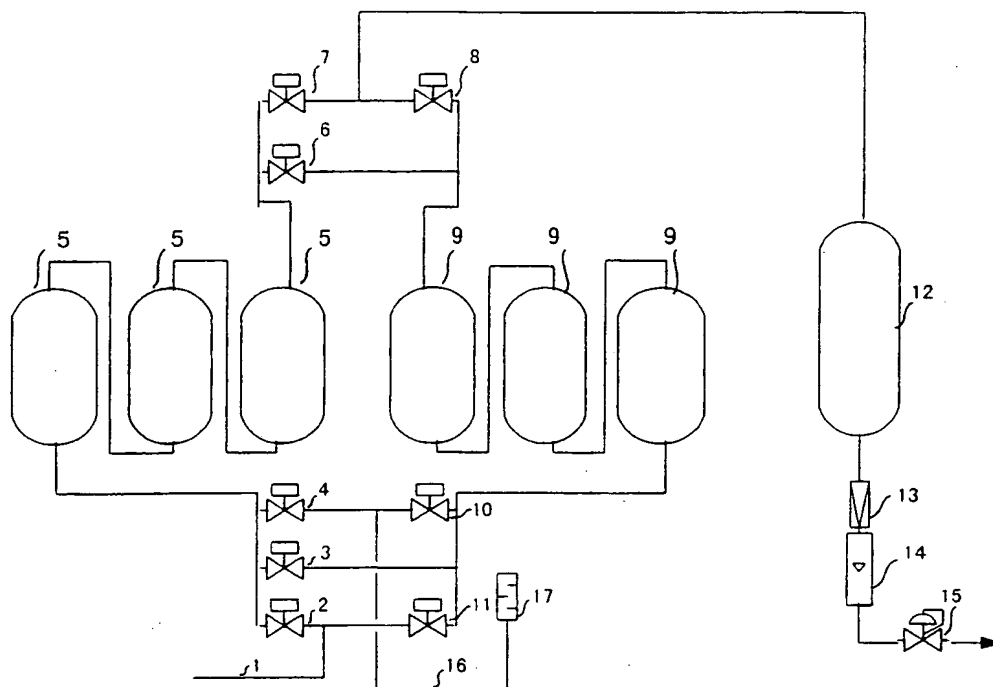
25



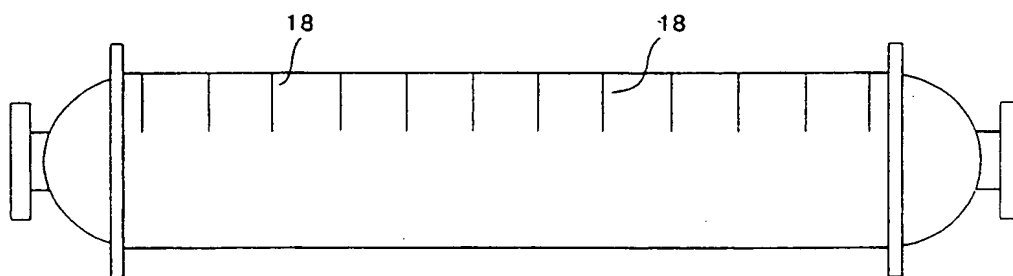
第2図



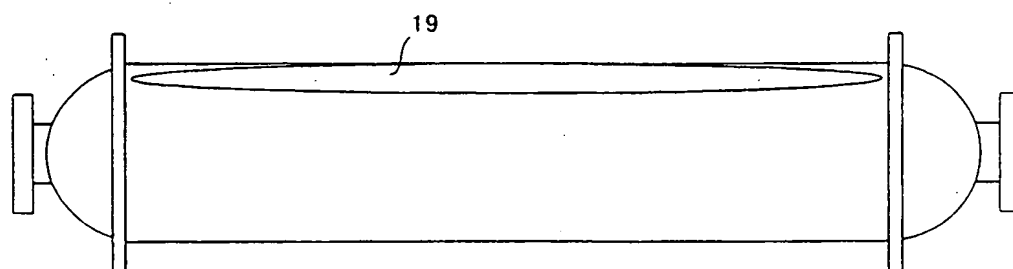
第3図



第4図



第5図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01889

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ B01D 53/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl.⁷ B01D 53/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP, 172003, A (PALL CORPORATION), 19 February, 1986 (19.02.86), Full text, & US, 4687573, A & JP, 61-54209, A Full text	1, 2, 5-8, 15, 16
X	JP, 53-33982, A (Kogyo Kaihatsu Kenkyusho), 30 March, 1978 (30.03.78), Full text (Family: none)	3
X	CD-ROM of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No.62095/1992 (Laid-open No.24727/1994) (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 05 April, 1994 (05.04.94), Full text (Family: none)	3
Y	JP, 9-168715, A (Hitachi, Ltd.), 30 June, 1997 (30.06.97), Par. No. [0013]; Fig. 2 (Family: none)	4, 14
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to	4, 14

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
29 May, 2000 (29.05.00)

Date of mailing of the international search report
06 June, 2000 (06.06.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01889

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	the request of Japanese Utility Model Application No.124408/1980 (Laid-open No.47220/1982) (K. Kawahata), 16 March, 1982 (16.03.82), Full text (Family: none)	
X	JP, 6-24726, U (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.),	9, 13
Y	05 April, 1994 (05.04.94), claims of utility model; Figs. 1 to 4 (Family: none)	10-12
Y	JP, 57-177527, U (Suido Kiko K.K.), 10 November, 1982 (10.11.82), claims of utility model; Fig. 1 (Family: none)	10-12

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl⁷ B01D 53/04

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl⁷ B01D 53/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996
 日本国公開実用新案公報 1971-2000
 日本国登録実用新案公報 1994-2000
 日本国実用新案登録公報 1996-2000

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP, 172003, A (PALL CORPORATION), 19. 2月. 1986 (19. 02. 86), 全文 & US, 4687573, A & JP, 61-54209, A, 全文	1, 2, 5-8, 15, 16
X	JP, 53-33982, A (財団法人工業開発研究所), 30. 3月. 1978 (30. 03. 78), 全文 (ファミリーなし)	3
X	日本国実用新案登録出願4-62095号 (日本国実用新案登録出願公開6- 24727号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を記録したCD-ROM (三菱重工株式会社), 5. 4月. 1994 (05. 04. 94), 全文 (ファミリーなし)	3

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29. 05. 00

国際調査報告の発送日

06.06.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森 健一

4Q

9263

電話番号 03-3581-1101 内線 3467

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 9-168715, A(株式会社日立製作所), 30. 6月. 1997(30. 06. 97), 段落【0013】, 第2図(ファミリーなし)	4, 14
Y	日本国実用新案登録出願55-124408号(日本国実用新案登録出願公開57-47220号)の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム(川畑 幸助), 16. 3月. 1982(16. 03. 82), 全文(ファミリーなし)	4, 14
X Y	JP, 6-24726, U(三菱重工株式会社), 5. 4月. 1994(05. 04. 94), 実用新案登録請求の範囲, 図1-4(ファミリーなし)	9, 13 10-12
Y	JP, 57-177527, U(水道機工株式会社), 10. 11月. 1982(10. 11. 82), 実用新案登録請求の範囲, 第1図(ファミリーなし)	10-12

THIS PAGE BLANK (US)